

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-317033
 (43)Date of publication of application : 31.10.2002

(51)Int.Cl. C08G 61/00
 C09K 11/06
 H05B 33/14
 H05B 33/22

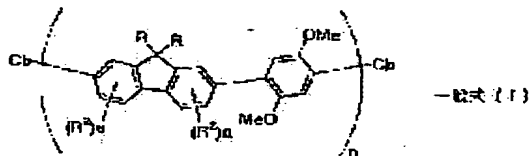
(21)Application number : 2001-121199 (71)Applicant : FUJI PHOTO FILM CO LTD
 (22)Date of filing : 19.04.2001 (72)Inventor : ARAKI KATSUMI

(54) NEW POLYMER, LIGHT-EMITTING ELEMENT MATERIAL, AND LIGHT-EMITTING ELEMENT UTILIZING THE SAME

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a polymer having high carrier injecting properties, transportability, emission luminance, luminous efficiency and color purity in an electroluminescent element.

SOLUTION: The new polymer is represented by formula (I) (wherein, R denotes a ≥ 7 C alkyl group; (n) denotes a number of ≥ 5 ; R₂ denotes a substituent group; a's denote each independently a number of 0-3; and Cb denotes an aromatic hydrocarbon group).



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's

BEST AVAILABLE COPY

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開 2002-317033

(P 2002-317033A)

(43) 公開日 平成14年10月31日 (2002. 10. 31)

(51) Int. Cl. ⁷	識別記号	F I	テームコード (参考)
C 0 8 G 61/00		C 0 8 G 61/00	3K007
C 0 9 K 11/06	6 8 0	C 0 9 K 11/06 6 8 0	4J032
H 0 5 B 33/14		H 0 5 B 33/14	B
33/22		33/22	B
			D
審査請求 未請求 請求項の数 4		OL	(全 14 頁)

(21) 出願番号 特願2001-121199 (P2001-121199)

(22) 出願日 平成13年4月19日 (2001. 4. 19)

(71) 出願人 000005201

富士写真フイルム株式会社

神奈川県南足柄市中沼210番地

(72) 発明者 荒木 勝己

神奈川県南足柄市中沼210番地 富士写真

フイルム株式会社内

(74) 代理人 100105647

弁理士 小栗 昌平 (外4名)

F ターム (参考) 3K007 AB02 AB03 AB04 AB11 AB18

CA01 CB01 DA01 DB03 EB00

4J032 BA12 BB06 BB09 BC02 CA04

CA12 CB12 CD00 CG00

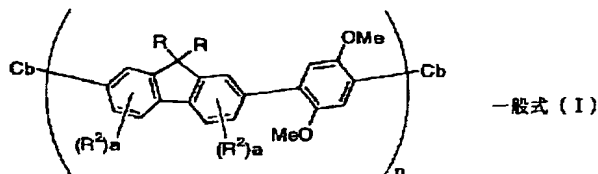
(54) 【発明の名称】 新規重合体、それを利用した発光素子材料および発光素子

(57) 【要約】

【課題】 電界発光素子においてキャリア注入性、輸送性、発光輝度、発光効率、色純度の高い重合体を提供する。

【解決手段】 下記一般式 (I) で表される重合体、該重合体である発光素子材料及び該重合体を含有する発光素子。

【化 1】

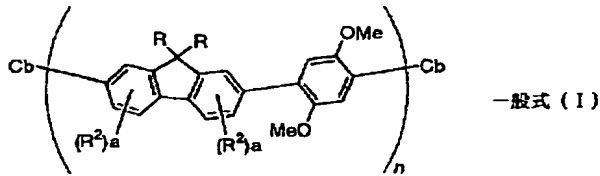


(式中、Rは炭素数7以上のアルキル基を、nは5以上の数を、R²は置換基を、aは独立に0から3までの数を表す。Cbは芳香族炭化水素基を表す。)

【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記一般式（I）で表される重合体。

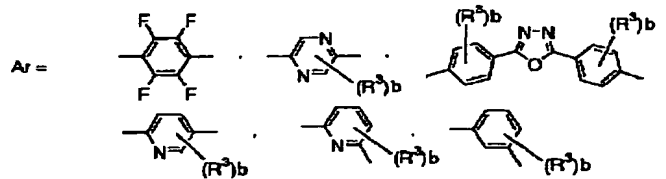
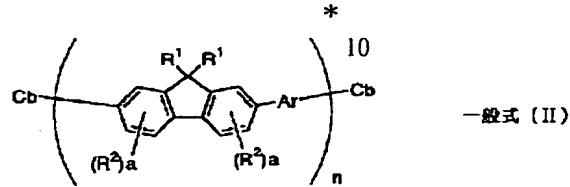
【化1】



*（一般式（I）中、Rは炭素数7以上20以下のアルキル基を、nは5以上の数を、R²は置換基を、aは独立に0から3までの数を表す。Cbは芳香族炭化水素基を表す。）

【請求項2】 下記一般式（II）で表される重合体。

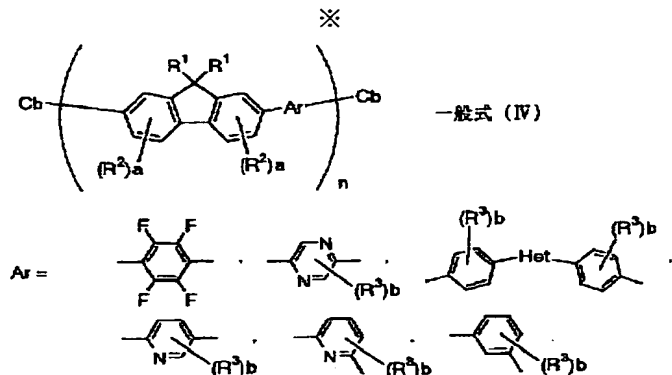
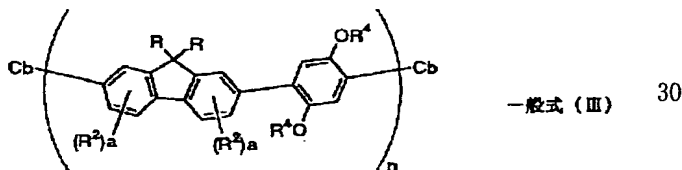
【化2】



（式中、nは5以上の数を、R¹、R²、R³は各々置換基を、aは独立に0から3までの数を表す。bは独立に0から2までの数を表す。Arは上記の基を表す。Cbは芳香族炭化水素基を表す。）

【請求項3】 下記一般式（III）または（IV）で表される重合体であることを特徴とする発光素子材料。

【化3】



（一般式（IV）中、nは5以上の数を、aは独立に0から3までの数を表す。R¹、R²、R³は各々置換基を表す。bは独立に0から2までの数を表す。Arは上記の基を表す。Cbは芳香族炭化水素基を表す。Hetはヘテロ芳香族環を表す。）

【請求項4】 一対の電極間に発光層もしくは発光層を含

※（一般式（III）中、Rは炭素数7以上20以下のアルキル基を、R²は置換基を、R⁴はアルキル基を、nは5以上の数を、aは独立に0から3までの数を表す。Cbは芳香族炭化水素基を表す。）

【化4】

む複数の有機化合物層を形成した発光素子において、少なくとも一層が請求項3記載の一般式（III）または（IV）で表される重合体を含有する事を特徴とする発光素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、高いキャリア注入性、キャリア輸送性を有する重合体、半導体素子用材料、それを利用した半導体素子、電気エネルギーを光に変換して発光できる有機電界発光素子（以下、発光素子と称する）用材料および発光素子に関し、電子回路、トランジスタや表示素子、ディスプレイ、バックライト、電子写真、照明光源、記録光源、読み取り光源、標識、看板、インテリア、光通信デバイス等の分野に好適に使用できる発光素子に関する。

【0002】

【従来の技術】今日、種々の表示素子に関する研究開発が活発であり、なかでも発光素子は、低電圧で高輝度の発光を得ることができるため、将来有望な表示素子として注目されている。例えば、有機化合物の蒸着により有機薄膜が積層された発光素子（積層型素子）（アプライド フィジックス レターズ、51巻、913頁、1987年）や、ポリマー系素子（Nature, Vol. 356, 5 March 1992, 47項）が知られている。

【0003】なかでもポリマー系材料による塗布型素子の作成は、製造プロセスが簡便であるため、これまで種々の検討がなされてきた。例えば、ポリフルオレン共重合体の重合方法は、米国特許、第5,777,070号等に、ポリフルオレン共重合体およびこれを使用した素子は、WO97/33323号、同97/05184号、同99/48160号、同99/54385号、アプライド フィジックス レターズ、75巻、3270頁、1999年等に開示されているとおりだが、更なる駆動電圧の低下、キャリア移動度の向上、発光効率の向上が望まれていた。またポリマー系発光材料を使用する場合、素子作成直後あるいは駆動または経時により、ポリマー鎖間の相互作用によってエキサイマーが形成され、発光波長が溶液状態より長波化するという問題が生

じる場合があった。

【0004】また長時間経時後に駆動した場合や連続駆動時に、輝度の低下が起きやすいなど耐久性でも問題があり、ポリマー系素子は実用に供するには多くの問題を抱えていた。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、製造工程、加工性、大面積化に有利なポリマー系材料を使用した場合の上記の問題を解決するべく、低電圧駆動、高輝度、高発光効率の特性を有し、かつ高温保存耐久性を有する新規な発光素子の提供にある。また電子デバイス材料として、ホールまたは電子を高い移動度で注入・輸送し、膜作成が簡便な材料を提供する事にある。

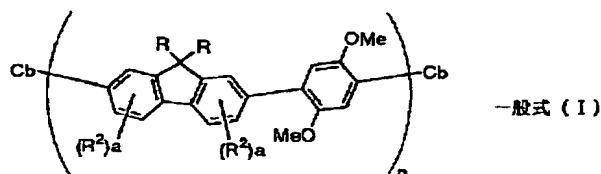
【0006】

【課題を解決するための手段】上記課題は下記の本発明の手段により達成された。

(1) 下記一般式 (I) で表される重合体。

【0007】

【化5】

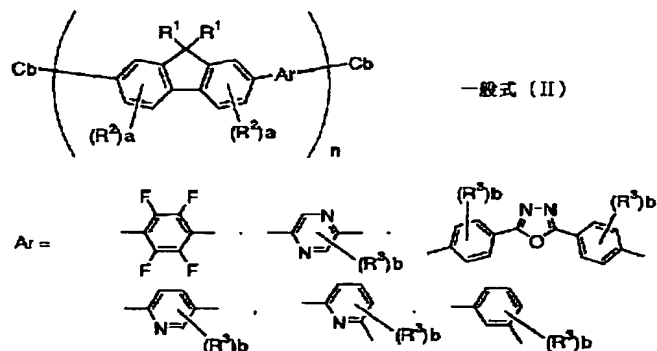


【0008】（一般式 (I) 中、Rは炭素数7以上のアルキル基を、nは5以上の数を、R²は置換基を、aは独立に0から3までの数を表す。Cbは芳香族炭化水素基を表す。）

(2) 下記一般式 (II) で表される重合体。

【0009】

【化6】

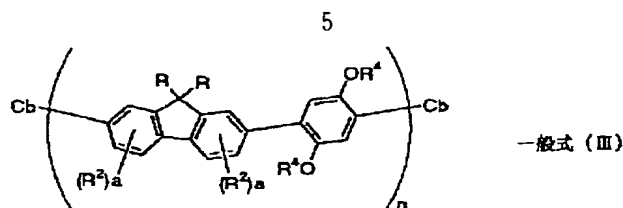


【0010】（式中、nは5以上の数を、R¹、R²、R³は各々置換基を、aは独立に0から3までの数を表す。bは独立に0から2までの数を表す。Arは上記の基を表す。Cbは芳香族炭化水素基を表す。）

(3) 下記一般式 (III) または (IV) で表される重合体であることを特徴とする発光素子材料。

【0011】

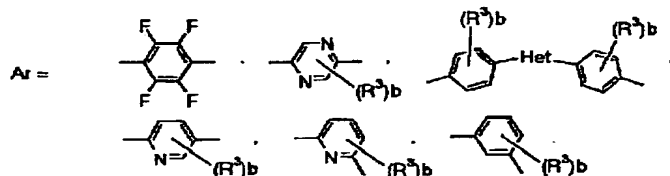
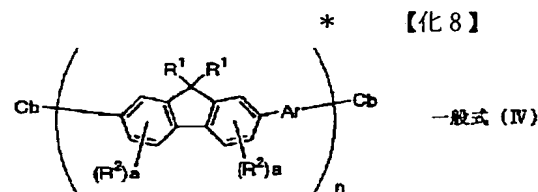
【化7】



*【0012】（一般式（III）中、Rは炭素数7以上のアルキル基を、R²は置換基を、R⁴はアルキル基を、nは5以上の数を、aは独立に0から3までの数を表す。Cbは芳香族炭化水素基を表す。）

【0013】

【化8】



【0014】(一般式(IV)中、nは5以上の数を、aは独立に0から3までの数を表す。 R^1 、 R^2 、 R^3 は各々置換基を表す。bは独立に0から2までの数を表す。 Ar は上記の基を表す。 Cb は芳香族炭化水素基を表す。 Het はヘテロ芳香族環を表す。)

(4) 一对の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物層を形成した発光素子において、少なくとも一層が(3)に記載の発光素子材料を含有する事を特徴とする発光素子。

【0015】

【発明の実施の形態】以下、本発明について詳細に説明する。なお、本明細書において「～」はその前後に記載される数値を、それぞれ最小値および最大値として含む範囲を示す。

【0016】上述の様に、低電圧駆動、高輝度、高発光効率の特性を有し、かつ高温保存耐久性を有する材料を開発するため、本発明者は鋭意検討を重ねた結果、上記一般式（I）～（IV）に示されるような共重合成分を有するポリフルオレン共重合体を開発するに至った。ポリフルオレン共重合体およびその重合方法およびこれを使用した素子等は、上述の米国特許、第5,777,070号、WO97/33323号、同97/05184

号、同99/48160号、同99/54385号、アブライド フィジックス レターズ、75巻、3270頁、1999年等で既に報告されている通りだが、上記(1)および(2)に示されるような共重合成分を有するポリフルオレン共重合体はこれまで全く報告されていなかった。また、アブライドフィジックス レターズ、75巻、3270頁、1999年には、2,5-ジデシルオキシ基を有する本発明の類似化合物が報告されており、種々の層構成のデバイスが検討されているが、フィルムでの発光波長420nmおよび448nm、半値幅69nmと依然発光波長は長く、素子性能でも駆動電圧

が高く低輝度であった。

【0017】次に本発明の一般式(1)の化合物について詳細に説明する。式中、Rとしては、それぞれ独立に、炭素数7から20までのアルキル基が好ましく、フルオレン環の9位炭素原子と結合し炭素数7から20の環構造を形成しても良い。Rとして、炭素数8から16までのアルキル基がより好ましく、ノルマルオクチル基、2-エチルヘキシル基、ノルマルデシル基、ノルマルドデシル基、ノルマルヘキサデシル基、が特に好ましい。

【0018】 R^2 としては、それぞれ独立に、炭素数1から20までのアルキル基、炭素数1から20までのアルキルオキシ基、炭素数1から20までのチオエーテル基、炭素数1から20までのアルキルカルボニルオキシ基またはシアノ基が好ましく、炭素数1から16までのアルキル基、炭素数1から16までのアルキルオキシ基、炭素数1から16までのチオエーテル基、炭素数1から16までのアルキルカルボニルオキシ基またはシアノ基がより好ましく、メチル基、エチル基、ノルマルプロピル基、イソプロピル基、ノルマルブチル基、イソブチル基、ターシャリーブチル基、ノルマルヘキシル基、ノルマルオクチル基、2-エチルヘキシル基、ノルマルドデシル基、ノルマルヘキサデシル基、メトキシ基、エトキシ基、ノルマルプロピルオキシ基、イソプロピルオキシ基、ノルマルブチルオキシ基、イソブチルオキシ基、ノルマルヘキシルオキシ基、ノルマルオクチルオキシ基、2-エチルヘキシルオキシ基、ノルマルドデシルオキシ基、ノルマルヘキサデシルオキシ基、メチルチオ基、エチルチオ基、ノルマルプロピルチオ基、イソプロピルチオ基、ノルマルブチルチオ基、イソブチルチオ基、ノルマルヘキシルチオ基、ノルマルオクチルチオ基、2-エチルヘキシルチオ基、ノルマルドデシルチオ基、ノルマルヘキサデシルチオ基、メチルカルボニルオ

キシ基、エチルカルボニルオキシ基、ノルマルプロピルカルボニルオキシ基、イソプロピルカルボニルオキシ基、ノルマルブチルカルボニルオキシ基、イソブチルカルボニルオキシ基、ノルマルヘキシルカルボニルオキシ基、ノルマルオクチルカルボニルオキシ基、2-エチルヘキシルカルボニルオキシ基、ノルマルドデシルカルボニルオキシ基、ノルマルヘキサデシルカルボニルオキシ基、シアノ基が特に好ましい。

【0019】ポリマーの重合度 n としては、5～100000が好ましく、10～1000000がより好ましく、20～1000000が特に好ましい。

【0020】 a としては、0～2が好ましく、0～1がより好ましく、0が特に好ましい。

【0021】 Cb としてはベンゼン環、ナフタレン環、フェナンスレン環が好ましく、これ等の環は更に置換基を有していても良い、置換基としては、アルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アラルキルオキシ基、アルキルチオ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基、カルボキシ基、ホルミル基、アルコシカルボニル基、アシル基、アルケニル基、ジアルキルアミノ基が好ましく、メチル基、エチル基、ノルマルプロピル基、イソプロピル基、ノルマルブチル基、ターシャリーブチル基、シクロプロピル基、フェニル基、メトキシ基、エトキシ基、ノルマルプロポキシ基、イソプロポキシ基、フェニルオキシ基、ベンジルオキシ基、メチルチオ基、エチルチオ基、ノルマルプロピルチオ基、イソプロピルチオ基、ノルマルブチルチオ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基、カルボキシ基、ホルミル基、メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基、ノルマルプロポキシカルボニル基、イソプロポキシカルボニル基、メチルカルボニル基、エチルカルボニル基、ノルマルプロピルカルボニル基、イソプロピルカルボニル基、ノルマルブチルカルボニル基、ビニル基、ジメチルアミノ基がより好ましく、メチル基、エチル基、ノルマルプロピル基、ターシャリーブチル基、シクロプロピル基、フェニル基、メトキシ基、エトキシ基、フェニルオキシ基、ベンジルオキシ基、メチルチオ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基、カルボキシ基、ホルミル基、メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基、メチルカルボニル基、ビニル基、ジメチルアミノ基が特に好ましい。

【0022】次に本発明の一般式(II)の化合物について詳細に説明する。 R^1 としては、それぞれ独立に、炭素数1から20までのアルキル基、一つ以上の硫黄原子、窒素原子、酸素原子または珪素原子を含有する炭素数1から20までのアルキル基、炭素数4から16までのアルキルカルボニルオキシ基、炭素数6から16までのアリール基が好ましく、フルオレン環の9位炭素原子と結合して環を形成してもよく、形成される環として好ましくは、炭素数5から20の環構造、あるいは硫黄原子、窒素原子または酸素原子を含有する炭素数4から2

0の環構造のものである。 R^1 として、炭素数1から16までのアルキル基、炭素数1から16までのポリアルキレンオキシ基、炭素数4から8までのアルキルカルボニルオキシ基、炭素数6から14までのアリール基がより好ましく、炭素数8から16までのアルキル基が更に好ましく、メチル基、エチル基、ノルマルプロピル基、イソプロピル基、ノルマルブチル基、イソブチル基、ノルマルヘキシル基、ノルマルオクチル基、2-エチルヘキシル基、ノルマルドデシル基、ノルマルヘキサデシル基、メトキシエトキシエチル基、エトキシエトキシエチル基、メチルカルボニルオキシ基、エチルカルボニルオキシ基、ノルマルプロピルカルボニルオキシ基、イソプロピルカルボニルオキシ基、ノルマルブチルカルボニルオキシ基、イソブチルカルボニルオキシ基、ノルマルヘキシルカルボニルオキシ基、フェニル基、ナフチル基、アンスリル基が更に好ましく、ノルマルヘキシル基、ノルマルオクチル基、2-エチルヘキシル基、ノルマルドデシル基、ノルマルヘキサデシル基が特に好ましい。

【0023】 R^2 、 a 、 n としては、一般式(I)で述べたのと同様の基がそれぞれ好ましい範囲として選択される。

【0024】 R^3 としては、アルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アラルキルオキシ基、アルキルチオ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基、ジアルキルアミノ基が好ましく、メチル基、エチル基、ノルマルプロピル基、イソプロピル基、ノルマルブチル基、ターシャリーブチル基、シクロプロピル基、フェニル基、メトキシ基、エトキシ基、ノルマルプロポキシ基、イソプロポキシ基、フェニルオキシ基、ベンジルオキシ基、メチルチオ基、エチルチオ基、ノルマルプロピルチオ基、イソプロピルチオ基、ノルマルブチルチオ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基、ジメチルアミノ基がより好ましく、メチル基、エチル基、ノルマルプロピル基、ターシャリーブチル基、シクロプロピル基、フェニル基、メトキシ基、エトキシ基、フェニルオキシ基、ベンジルオキシ基、メチルチオ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基、ジメチルアミノ基が特に好ましい。

【0025】 b としては、0～1が好ましく、0がより好ましい。

【0026】 Cb としては、一般式(I)で述べたのと同様の基が好ましい範囲として選択される。

【0027】次に本発明の一般式(III)の化合物について詳細に説明する。 R 、 R^2 、 a 、 n としては、一般式(I)で述べたのと同様の基がそれぞれ好ましい範囲として選択される。 R^4 としては、炭素数1～9のアルキル基が好ましく、炭素数1～6のアルキル基がより好ましく、炭素数1～4のアルキル基が特に好ましい。 Cb としては一般式(I)で述べたのと同様の基が好ましい範囲として選択される。

【0028】次に本発明の一般式(IV)の化合物について

て詳細に説明する。R¹、R²、a、n、Cb、bとしては、一般式(II)で述べたのと同様の基がそれぞれ好ましい範囲として選択される。Hetとしては、トリアゾール、チアジアゾール、オキサジアゾール、トリアジン、ピラジン、ピリミジン、フラン、ピロール、チオフェン、オキサゾール、ピリジン、ベンゾフラン、フェナンスロリン等の環が好ましく、トリアゾール、チアジアゾール、オキサジアゾール、トリアジン、フラン、ピロール、チオフェン、オキサゾール、ピリジン、フェナンスロリン等がより好ましく、トリアゾール、オキサゾール、トリアジン、ピロール、チオフェン、オキサゾール、ピリジン、フェナンスロリン等が特に好ましい。

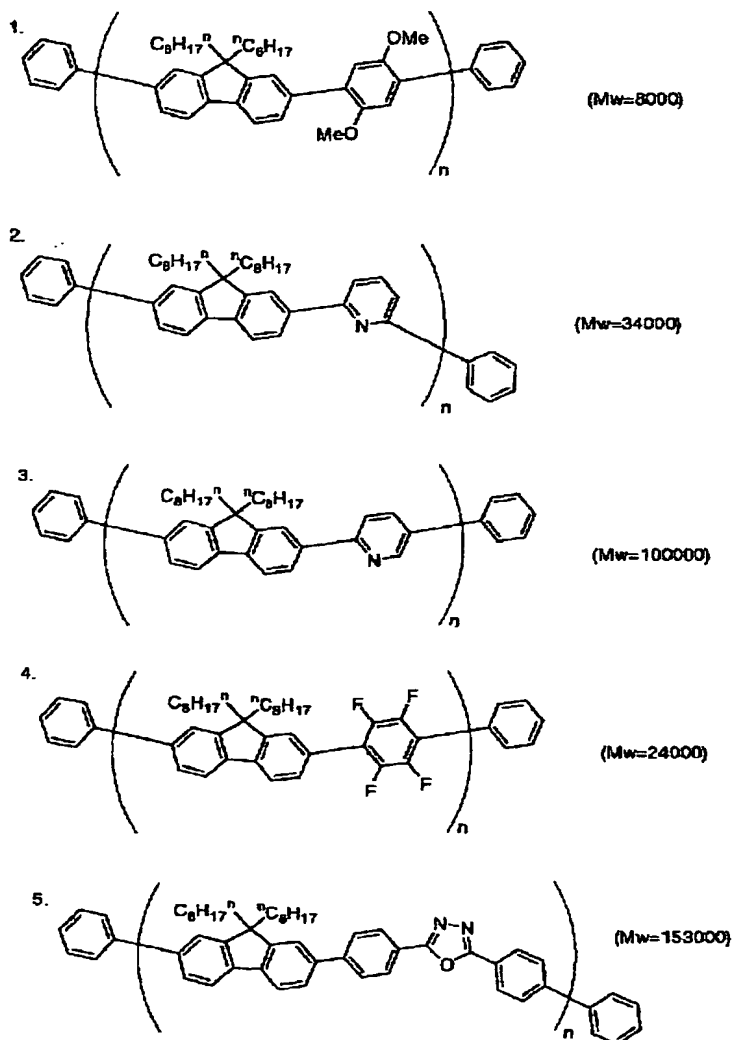
またこれ等の環は置換基を有していても良く、置換基と*

*としては、アルキル基、アリール基、シアノ基が好ましく、メチル基、エチル基、ノルマルプロピル基、イソプロピル基、ノルマルブチル基、イソブチル基、ターシャリーブチル基、フェニル基、シアノ基がより好ましく、メチル基、エチル基、ノルマルプロピル基、イソプロピル基、ターシャリーブチル基、フェニル基、シアノ基が特に好ましい。

【0029】以下に本発明に用いられる一般式(I)～(IV)で表される化合物のうち特に有効な代表的な化合物例を示す。

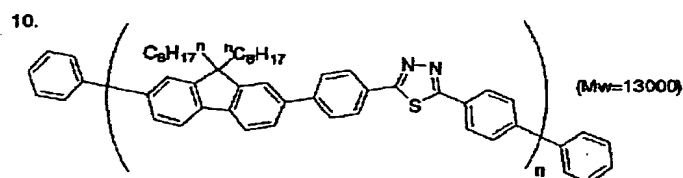
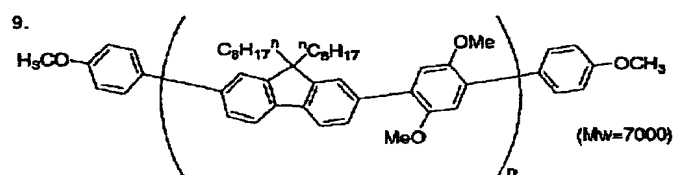
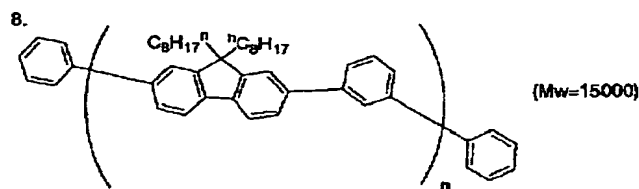
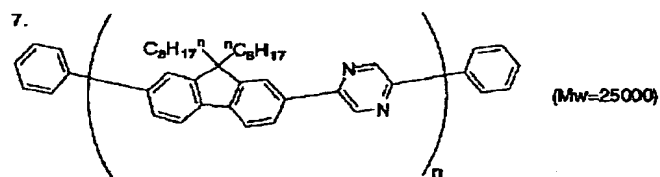
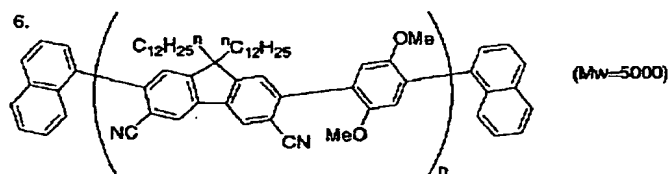
【0030】

【化9】



【0031】

【化10】



【0032】次に、上記の一般式(I)～(IV)で表される重合体の製造方法について説明する。重合の方法は、米国特許、第5,777,070号等に開示されている方法や、*Macromolecules*, 1997年, 30巻, 7686-7691項等に記載されている方法に従って行う事ができる。二官能の硼酸試薬と芳香族ハロゲン化物のカップリング反応により重合を行う場合、両モノマーの比率は、0.90:1.10～1.00:1.00が好ましく、0.95:1.05～1.00:1.00がより好ましく、0.98:1.02～1.00:1.00が特に好ましい。使用する溶媒は、各モノマーを少なくとも1%以上、好ましくは2%以上溶解して溶液をなすものが好ましく、より好ましくは、炭素数6～20までの芳香族基含有溶媒、特に、ベンゼン、トルエン、キシレン、エチルベンゼン、メシチレン、アニソール、またはこれらのフッ素化物が好ましいがトルエンが最も好適に使用される。使用する溶媒の量は、重合の進行により増粘する反応混合物を効果的に攪拌出来るように選択されるが、一般的にはモノマー1g

に対して1~100mlが好ましく、3~50mlがより好ましく、5~20mlが特に好ましい。

【００３３】使用する塩基としては、水溶性有機塩基が好ましく、アルカリ金属炭酸塩、アルカリ金属炭酸水素塩がより好ましく、炭酸カリウム、炭酸ナトリウムが特に好ましい。使用する塩基の水中の濃度としては、１～１０規定が好ましく、１～５規定がより好ましく、１～３規定が特に好ましい。使用する塩基の量としては、ハロゲン化物モノマーに対して、１～１０当量が好ましく、１～５当量がより好ましく、１～３当量が特に好ましい。使用する重合触媒としては、パラジウム触媒が好ましく、Pd(II)塩またはゼロ価パラジウム(Pd(0))がより好ましく、酢酸パラジウム、またはテトラキス(トリフェニルフォスフィン)パラジウムが特に好ましい。使用する重合触媒の量としては、モノマー１モルに対して、 $1 \times 10^{-6} \sim 1 \times 10^{-1}$ モルが好ましく、 $1 \times 10^{-5} \sim 1 \times 10^{-2}$ モルがより好ましく、 $1 \times 10^{-4} \sim 5 \times 10^{-3}$ モルが特に好ましい。

【0034】 相関移動触媒の使用は、ポリマーの重合度

を上げる為に、非常に効果的である。使用する相関移動触媒としては、アンモニウム塩、ホスホニウム塩、クラウンエーテル、クリプタン等が好ましく、テトラアルキルアンモニウムハライド、テトラアルキルアンモニウム硫酸水素塩、テトラアルキルアンモニウムヒドロキシド等がより好ましく、テトラノルマルブチルアンモニウムハライド、ベンジルトリエチルアンモニウムハライド、トリカブリルイルメチルアンモニウムクロライド等が特に好ましい。使用する相関移動触媒の量としては、モノマー1モルに対し0.001モル～1モルが好ましく、0.01モル～0.5モルがより好ましく、0.05モル～0.3モルが特に好ましい。

【0035】重合反応の温度としては、使用する溶媒の沸点付近が好ましいが、室温～170℃が好ましく、室温～150℃がより好ましく、室温～130℃が特に好ましい。重合時間としては、1～50時間が好ましく、1～24時間がより好ましく、1～10時間が特に好ましい。生成するポリマーの重合度としては、5～100000が好ましく、10～1000000がより好ましく、20～1000000が特に好ましい。ポリマーの分散度は1.0～10が好ましく、1.0～7.0がより好ましく、1.0～5.0が特に好ましい。

【0036】重合させたポリマーの精製法も特に限定されないが、通常反応溶液を直接あるいは上記の重合に適した溶媒により希釈した後、貧溶媒に滴下して再沈殿精製する方法が好ましい。貧溶媒としては、アルコール、水、アセトン、酢酸エステル、アセトニトリル、炭化水素系溶媒およびこれらの混合溶媒が好ましく、エタノール、メタノール、水、アセトン、酢酸エチル、アセトニトリル、ヘキサン、ヘプタンおよびこれらの混合溶媒がより好ましく、エタノール、メタノール、水、アセトン、酢酸エチル、アセトニトリル、ヘキサンおよびこれらの混合溶媒がより好ましい。

【0037】次に、一般式(I)～(IV)で表される重合体であることを特徴とする発光素子材料について説明する。なお、本発明において発光素子材料とは、発光性化合物単独の役割、又は電子注入性化合物、電子輸送性化合物、ホール注入性化合物、ホール輸送性化合物、およびホスト化合物といった複数の役割を担う材料を意味する。重合体は単一の成分からなるホモポリマーであっても良いし、多成分からなる共重合体であっても良い。また上述の様に、特定の可溶溶媒中でモノマーを重合させて得られたポリマーをそのまま、あるいは必要に応じて精製したのちに使用しても良い。またキャリア移動性の観点から一般式(I)～(IV)で表される重合体が電子注入性化合物、電子輸送性化合物、ホール注入性化合物、ホール輸送性化合物、ホスト化合物およびこれらの複数の役割を担う事が好ましい。発光素子用材料または半導体素子用材料としてのポリマーのキャリア移動性の度合いも特に限定されないが、電界強度400～10

00((V/cm)^{1/2})の範囲で、電子移動度およびホール移動度ともに $1.0 \times 10^{-8} \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ 以上の値が好ましく、 $1.0 \times 10^{-7} \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ 以上の値がより好ましく、 $1.0 \times 10^{-6} \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ 以上の値が特に好ましい。

【0038】次に、一対の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄層を形成した発光素子において、少なくとも一層が一般式(I)～(IV)で表される重合体を含む発光素子について説明する。発光素子用材料または半導体素子用材料としてのポリマーのキャリア移動性の度合いも特に限定されないが、電界強度400～1000((V/cm)^{1/2})の範囲で、電子移動度およびホール移動度ともに $1.0 \times 10^{-8} \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ 以上の値が好ましく、 $1.0 \times 10^{-7} \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ 以上の値がより好ましく、 $1.0 \times 10^{-6} \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ 以上の値が特に好ましい。

【0039】本発明の発光素子は、陽極と陰極の一対の電極間に、発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄層を形成した構成であり、発光層のほか保護層などを有してもよく、またこれらの各層はそれぞれ他の機能を備えたものであってもよい。各層の形成にはそれぞれ種々の材料を用いることができる。

【0040】有機化合物層は、電子注入性化合物、電子輸送性化合物、電子注入性および輸送性を兼ねる化合物(電子注入性兼輸送性化合物)、ホール注入性化合物、ホール輸送性化合物、ホール注入性およびホール輸送性を兼ねる化合物(ホール注入性兼輸送性化合物)、電子注入性兼輸送性とホール注入性兼輸送性のそれぞれを兼ねる化合物(電子注入性兼輸送性化合物兼ホール注入性兼輸送性化合物)、発光性化合物、ホスト化合物、電子供与性ドーパント、電子受容性ドーパント等から選択される幾つかの材料を含む使用されるものである。

【0041】本発明の有機化合物層は高分子化合物のみで構成されてもよいし、高分子化合物と低分子化合物の混合物で構成されていてもどちらでもよい。

【0042】本発明の発光素子に使用する有機化合物層中に含まれる、電子注入性化合物、電子輸送性化合物、電子注入性兼輸送性化合物、ホール注入性化合物、ホール輸送性化合物、ホール注入性兼輸送性化合物、電子注入性兼輸送性化合物兼ホール注入性兼輸送性化合物、発光性化合物、ホスト化合物、電子供与性ドーパント、電子受容性ドーパントなどのこれらの化合物は、幾つかの機能を担う性質、部分が一つの分子中に含有されていてもよい。またそれぞれの機能が、別々の分子に分かれていてもよい。

【0043】電子注入性兼輸送性化合物兼ホール注入性兼輸送性化合物が担う電子注入性および輸送性、ホール注入性および輸送性の寄与の割合は化合物により異なる値をとり得る。

【0044】本発明の有機化合物層の電子移動度は駆動

電圧の観点から、電界強度 $400 \sim 1000$ (V/cm)^{1/2} の範囲で、 $3 \times 10^{-8} \text{cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ 以上の値を有することが好ましく、 $1 \times 10^{-7} \text{cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ 以上の値がより好ましく、 $5 \times 10^{-6} \text{cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ 以上の値が更に好ましい。

【0045】有機化合物層の電子移動度は、電子注入性化合物、電子輸送性化合物、電子注入性兼輸送性化合物、ホール注入性化合物、ホール輸送性化合物、ホール注入性兼輸送性化合物、電子注入性兼輸送性化合物兼ホール注入性兼輸送性化合物の該層を構成するそれぞれの化合物自身をもつ電子移動度により規定されるが、これら化合物同士の混合量によっても電子移動度が規定される。該電子移動度の値を有する化合物としては、主にヘテロ原子含有有機化合物、電子輸送性有機化合物、有機化合物錯体、有機金属錯体、有機金属化合物、電荷移動錯体、およびこれらの重合体、共役系ポリマー、導電性ポリマー等が知られているが、上記電子移動度の値を満たすものであれば特に限定される事はなく、適宜選択して使用できる。上記の例の中で、含窒素有機化合物、含酸素有機化合物、含硫黄有機化合物、含硼素有機化合物、含珪素有機化合物、含磷有機化合物、液晶性有機化合物、結晶性有機化合物、有機化合物錯体、有機金属錯体、有機金属化合物、電荷移動錯体、共役系ポリマー等が好ましく、中でもヘテロ原子含有芳香族有機化合物、ヘテロ原子含有芳香族有機化合物の電荷移動錯体、有機金属化合物、電荷移動錯体、液晶性有機化合物、結晶性有機化合物およびこれらの重合体、共役系ポリマー等がより好ましい。

【0046】本発明における電子移動度の測定は、タイムオブフライト（以下、TOFと称する）法により測定した。TOF法については、シンセティックメタルズ（Synth. Met.）111/112, (2000) 331ページの記載を参照できる。

【0047】本発明の有機化合物層に用いられる化合物のイオン化ポテンシャルは、通常は最小値をもつ化合物により決まる。該化合物のイオン化ポテンシャルはホール注入性の観点で 4.7eV 以上 10.0eV 以下であることが好ましく、 4.8eV 以上 10.0eV 以下であることがより好ましく、 4.9eV 以上 10.0eV 以下であることが更に好ましい。本発明の有機化合物層に用いられるアリアルアミン誘導体のイオン化ポテンシャルも同様にホール注入性の観点で 5.0eV 以上 10.0eV 以下であることが好ましく、 5.1eV 以上 10.0eV 以下であることがより好ましく、 5.2eV 以上 10.0eV 以下であることが更に好ましい。

【0048】本発明の有機化合物層を使用する場合には PEDOT-PPS 膜（ポリエチレンジオキシチオフェン-ポリスチレンスルホン酸ドーブ体）のような水系塗布した薄膜の上に本発明の有機化合物層を設けてもよい。本発明の有機化合物層を設ける場合には、低分子蒸

着プロセスでもよいし、塗布プロセスでもよい。塗布プロセスの場合、好ましい塗布溶媒としては水、メタノール、エタノール、プロパノール、イソプロパノール、ブタノール、蟻酸、酢酸、メチルセロソルブ、エチルセロソルブ、エチレングリコール、プロピレングリコール、ジオキサン、ベンゼン、トルエン、キシレン、クロロホルム、ジクロロメタン、ジクロロエタン、テトラヒドロフランおよびこれらの混合溶媒が好ましく、水、メタノール、エタノール、プロパノール、イソプロパノール、酢酸、メチルセロソルブ、エチルセロソルブ、エチレングリコール、ジオキサン、トルエン、クロロホルム、ジクロロメタン、ジクロロエタン、テトラヒドロフランおよびこれらの混合溶媒がより好ましい。

【0049】陽極はホール注入性化合物、ホール輸送性化合物、ホール注入性兼輸送性化合物、ホスト化合物などにホールを供給するものであり、金属、合金、金属酸化物、導電性化合物、またこれらの混合物などを用いることができ、好ましくは仕事関数が 4eV 以上の材料である。具体例としては、酸化スズ、酸化亜鉛、酸化インジウム、錫ドーブ酸化インジウム（ITO）等の導電性金属酸化物、もしくは金、銀、クロム、ニッケル等の金属、およびこれらの金属と導電性金属酸化物との混合物、または無機導電性物質（積層物、沃化銅、硫化銅など）、有機導電性材料（ポリアニリン、ポリチオフェン、ポリピロールなど）、およびこれらと ITO との積層物などが挙げられ、好ましくは、導電性金属酸化物、有機導電性材料、またはこれらの積層物であり、生産性、高導電性、透明性等の点から ITO または ITO/PEDOT-PPS 積層物がより好ましい。陽極の膜厚は材料により適宜選択可能であるが、通常 $10 \text{nm} \sim 5 \mu\text{m}$ の範囲のものが好ましく、より好ましくは、 $50 \text{nm} \sim 1 \mu\text{m}$ であり、更に好ましくは $100 \text{nm} \sim 500 \text{nm}$ である。

【0050】陽極は通常、ソーダライムガラス、無アルカリガラス、透明樹脂基板などの上に層形成したものが用いられる。ガラスを用いる場合、その材質については、ガラスからの溶出イオンを少なくするため、無アルカリガラスを用いることが好ましい。また、ソーダライムガラスを用いる場合、シリカなどのバリアコートを施したものを使用する事が好ましい。基板の厚みは、機械的強度を保つのに十分であれば特に制限はないが、ガラスを用いる場合には、通常 0.2mm 以上、好ましくは 0.7mm 以上のものを用いる。陽極の作成には材料によって種々の方法が用いられるが、例えば ITO の場合、電子ビーム法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着法、化学反応法（ゾルゲル法など）、ITO 分散物の塗布などの方法で膜形成される。陽極は洗浄その他の処理により、素子の駆動電圧を下げて発光効率を高めることも可能である。例えば ITO の場合、UV-オゾン処理、プラズマ処理などが効果的である。

【0051】陰極は電子注入性化合物、電子輸送性化合物、電子注入性兼輸送性化合物、ホスト化合物などに電子を供給するものであり、これらの化合物やマトリクス化合物との密着性やイオン化ポテンシャル、安定性等を考慮して選択される。陰極の材料としては金属、合金、金属ハロゲン化物、金属酸化物、電気伝導性化合物、有機金属塩またはこれらの混合物または積層物を用いることができ、具体例としてはアルカリ金属（例えばLi、Na、K等）およびそのフッ化物または酸化物、アルカリ土類金属（例えばMg、Ca等）およびそのフッ化物または酸化物、金、銀、鉛、アルミニウム、ナトリウム-カリウム合金またはそれらの混合金属、リチウム-アルミニウム合金またはそれらの混合金属、マグネシウム-銀合金またはそれらの混合金属、インジウム、イッテルビウム等の希土類金属、アルカリ金属およびアルカリ土類金属の有機化合物塩等が挙げられ、好ましくは仕事関数が4 eV以下の材料であり、より好ましくはアルミニウム、リチウム-アルミニウム合金またはそれらの混合金属、マグネシウム-銀合金またはそれらの混合金属、有機リチウム塩等である。

【0052】陰極は、上記化合物および混合物の単層構造だけでなく、上記化合物および混合物を含む積層構造を取ることもできる。陰極の膜厚は材料により適宜選択可能であるが、通常10 nm～5 μmの範囲が好ましく、より好ましくは50 nm～1 μmであり、更に好ましくは100 nm～1 μmである。陰極の作製には電子ビーム法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着法、コーティング法などの方法が用いられ、金属を単体で蒸着することも、二成分以上を同時に蒸着することもできる。また複数の金属を同時に蒸着して合金電極を形成することも可能であり、またあらかじめ調整した合金を蒸着させてもよい。陽極および陰極のシート抵抗は低い方が好ましく、15 Ω/□以下が好ましい。

【0053】発光性化合物は、電界印加時に陽極またはホール注入層、ホール輸送層からホールを注入することができると共に陰極または電子注入層、電子輸送層から電子を注入することができる機能や、注入された電荷を移動させる機能、ホールと電子の再結合の場を提供して発光させる機能を有するものであれば何でもよく、一重項励起子または三重項励起子のいずれから発光するものでもよい。発光性化合物として好ましくは共役系不飽和化合物またはオルトメタル化金属錯体またはボルフィリン金属錯体が挙げられるが、他の発光材料を併用して用いてもよい。発光材料は重合体を用いても低分子材料を用いてもよい。具体的には下記に挙げる化合物等を用いることができる。

【0054】(a) ベンゾオキサゾール、ベンゾイミダゾール、ベンゾチアゾール、スチリルベンゼン、ポリフェニル、ジフェニルブタジエン、テトラフェニルブタジエン、ナフタルイミド、クマリン、ベリレン、ベリノン、

オキサジアゾール、アルダジン、シクロペンタジエン、ビススチリルアントラセン、キナクリドン、ピロロピリジン、チアジアゾロピリジン、シクロペンタジエン、スチリルアミン、芳香族ジメチリデン化合物、ビレン、およびこれらの誘導体など。

(b) 8-キノリノールおよびその誘導体の金属錯体や希土類錯体に代表される各種金属錯体など。

(c) ポリチオフェン、ポリフェニレン、ポリフルオレン、ポリフェニレンビニレン、およびこれらの置換されたポリマー化合物など

(d) オルトメタル化金属錯体またはボルフィリン金属錯体など。

【0055】前記化合物の中でも、好ましく用いられる化合物は以下のとおりである。スチリルベンゼン、ポリフェニル、ジフェニルブタジエン、テトラフェニルブタジエン、クマリン、ベリレン、オキサジアゾール、ビススチリルアントラセン、キナクリドン、シクロペンタジエン、スチリルアミン、芳香族ジメチリデン化合物、ビレン、およびこれらの誘導体など；8-キノリノールおよびその誘導体の金属錯体や希土類錯体に代表される各種金属錯体など；ポリチオフェン、ポリフェニレン、ポリフルオレン、ポリフェニレンビニレン、およびこれらの置換されたポリマー化合物など；オルトメタル化金属錯体またはボルフィリン金属錯体など；

【0056】前記化合物の中でも、更に好ましく用いられる化合物は以下のとおりである。スチリルベンゼン、ポリフェニル、ジフェニルブタジエン、テトラフェニルブタジエン、クマリン、ベリレン、オキサジアゾール、ビススチリルアントラセン、スチリルアミン、芳香族ジメチリデン化合物、ビレン、およびこれらの誘導体など；8-キノリノールおよびその誘導体の金属錯体や希土類錯体に代表される各種金属錯体など；ポリチオフェン、ポリフェニレン、ポリフルオレン、ポリフェニレンビニレンおよびこれらの置換されたポリマー化合物など；オルトメタル化金属錯体またはボルフィリン金属錯体など；

【0057】有機化合物層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1 nm～5 μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5 nm～1 μmであり、更に好ましくは10 nm～500 nmである。

【0058】有機化合物層の形成方法は、特に限定されるものではないが、抵抗加熱蒸着、電子ビーム、スパッタリング、分子積層法、コーティング法（スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など）、インクジェット法、印刷法、転写法、LB（ラングミュア-プロジェット）法などの方法が用いられ、好ましくは抵抗加熱蒸着、コーティング法、インクジェット法、印刷法である。コーティング法、インクジェット法、印刷法の場合、樹脂成分と共に溶解または分散することができ、樹脂成分としては例えば、ポリ塩化ビニル、ポリカーボネ

ート、ポリスチレン、ポリメチルメタクリレート、ポリブチルメタクリレート、ポリエステル、ポリスルホン、ポリフェニレンオキシド、ポリブタジエン、ポリ(N-ビニルカルバゾール)、炭化水素樹脂、ケトン樹脂、フェノキシ樹脂、ポリアミド、エチルセルロース、酢酸ビニル、ABS樹脂、ポリウレタン、メラミン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂などが挙げられる。

【0059】ホール注入性、ホール輸送性化合物は、陽極からホールを注入する機能、ホールを輸送する機能、陰極から注入された電子を障壁する機能のいずれか有しているものであればよく、重合体を用いても低分子化合物を用いてもよい。その具体例としては、カルバゾール、トリアゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、イミダゾール、ポリアリールアルカン、ピラゾリン、ピラゾロン、フェニレンジアミン、アリールアミン、アミノ置換カルコン、スチリルアントラセン、フルオレノン、ヒドラゾン、スチルベン、シラザン、およびこれらの誘導体、芳香族第三級アミン化合物、スチリルアミン化合物、芳香族ジメチリデン系化合物、ボルフィリン系化合物、ポリシラン系化合物、ポリ(N-ビニルカルバゾール)誘導体、アニリン系共重合体、チオフエン化合物、ポリチオフエン、置換および無置換ポリチオフエン-ポリスチレンスルホン酸混合物等の導電性高分子オリゴマー等が挙げられ、またこれらの混合物であってもよい。とりわけカルバゾール、トリアゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、イミダゾール、フェニレンジアミン、アリールアミン、フルオレノン、スチルベン、シラザン、およびこれらの誘導体、芳香族第三級アミン化合物、スチリルアミン化合物、芳香族ジメチリデン系化合物、アニリン系共重合体、チオフエン化合物、ポリチオフエン、置換および無置換ポリチオフエン-ポリスチレンスルホン酸混合物等の導電性高分子オリゴマー等がより好ましい。この中でも、ホール輸送機能の点でカルバゾール、トリアゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、イミダゾール、フェニレンジアミン、アリールアミン、フルオレノン、シラザン、およびこれらの誘導体、芳香族第三級アミン化合物、チオフエン化合物、置換および無置換ポリチオフエン-ポリスチレンスルホン酸混合物等の導電性高分子オリゴマー等が更に好ましい。

【0060】電子注入性化合物、電子輸送性化合物、電子注入性兼輸送性化合物の材料は、陰極から電子を注入する機能、電子を輸送する機能、陽極から注入されたホールを障壁する機能のいずれか有しているものであればよい。具体例としては、ビリジン、ピラジン、キノリン、キノキサリン、フェナンスロリン、トリアジン、チエノピラジン、ベンズイミダゾール、ベンズオキサゾール、ベンゾトリアゾール、フェナントリジン、トリアゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、フルオレノ

ン、アントラキノジメタン、アントロン、ジフェニルキノン、チオピランジオキシド、カルビジイミド、フルオレニリデンメタン、ジスチリルピラジン、フタロシアニン、およびこれらの誘導体、ナフタレンペリレン等の複素環テトラカルボン酸無水物、8-キノリノール誘導体の金属錯体やメタルフタロシアニン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾールを配位子とする各種金属錯体等が挙げられる。混合物またはポリマーとして使用してもよい。とりわけビリジン、ピラジン、キノリン、キノキサリン、フェナンスロリン、トリアジン、フェナントリジン、トリアゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、フルオレノン、フタロシアニン、およびこれらの誘導体、ナフタレンペリレン等の複素環テトラカルボン酸無水物、8-キノリノール誘導体の金属錯体やメタルフタロシアニン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾールを配位子とする各種金属錯体等およびこれらのポリマーがより好ましい。この中でもビリジン、ピラジン、キノリン、キノキサリン、フェナンスロリン、トリアジン、トリアゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、フルオレノン、フタロシアニン、およびこれらの誘導体、8-キノリノール誘導体の金属錯体やメタルフタロシアニンおよびこれらのポリマーが更に好ましい。

【0061】本発明における有機化合物層に含有されるアリールアミンおよびその誘導体は、通常はホール注入性およびホール輸送性化合物、ホスト化合物として作用するが、高分子になると電子輸送性化合物としても作用することが知られている。アリールアミンおよびその誘導体は、具体的にはトリアリールアミンおよびその誘導体、N-フェニルカルバゾールおよびその誘導体が好ましく、中でもN-フェニルカルバゾールおよびその誘導体がより好ましく用いられる。これらは低分子化合物であっても高分子化合物であってもよい。

【0062】保護層の材料としては、水分や酸素等の素子劣化を促進するものが素子内へ侵入するのを防止する機能を有しているものであればよい。その具体例としては、In、Sn、Pb、Au、Cu、Ag、Al、Ti、Ni等の金属、MgO、SiO、SiO₂、Al₂O₃、GeO、NiO、CaO、BaO、Fe₂O₃、Y₂O₃、TiO₂等の金属酸化物、MgF₂、LiF、AlF₃、CaF₂等の金属フッ化物、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリメチルメタクリレート、ポリイミド、ポリウレタ、ポリテトラフルオロエチレン、ポリクロロトリフルオロエチレン、ポリジクロロジフルオロエチレン、クロロトリフルオロエチレンとジクロロジフルオロエチレンとの共重合体、テトラフルオロエチレンと少なくとも1種のコモノマーを含むモノマー混合物を共重合させて得られる共重合体、共重合主鎖に環状構造を有する含フッ素共重合体、吸水率1%以上の吸水性物質、吸水率0.1%以下の防湿性物質等が挙げられる。

【0063】保護層の形成方法についても特に限定はな

く、例えば化学蒸着法（CVD法）、真空蒸着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、分子線エピタキシ（MBE）法、クラスターイオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法（高周波励起イオンプレーティング法）、プラズマCVD法、レーザーCVD法、熱CVD法、ガスソースCVD法、インクジェット法、印刷法、コーティング法、転写法を適用できる。

【0064】

【実施例】以下に実施例を挙げて本発明を具体的に説明するが、本発明はこれにより限定されるものではない。なお下記実施例において以下の測定を行った。重量平均分子量は、ゲル濾過法を用いてテトラヒドロフランを溶離液としてポリスチレン換算したものである。イオン化ポテンシャルは紫外線光電子分析装置AC-1により測定した。溶液の吸収は、クロロホルム中、 $1 \times 10^{-7} \text{mol/l}$ の濃度のときのものである。エネルギーギャップは、溶液吸収の長波端の波数をエネルギーに換算して求めた。電子親和力はイオン化ポテンシャルの値からエネルギーギャップの値を差して求めた。膜の発光極大波長は、ポリマー20mgをクロロホルム2mlに溶かした溶液をガラス基板上に5000rpm×20秒の条件にてスピンコート塗布し、真空乾燥して得られた膜を、255nmの光で励起した時に測定したものである。ガラス転位温度はDSCを用いて通常の方法により測定した。

実施例1（例示化合物1の合成）

窒素気流下、2,7-ビス（4,4,5,5-テトラメチル-1,3,2-ジオキサボロラン-2-イル）-9,9-ジ-ノルマルオクチルフルオレン1.6064g（2.50mmol）、1,4-ジブプロモ-2,5-ジメトキシベンゼン0.7399g（2.50mmol）、トルエン11ml、トリカブリンイルメチルアンモニウムクロライド0.125g（0.31mmol）を入れ室温で10分攪拌した。次いでテトラキス（トリフェニルフォスフィン）パラジウム0.015g（0.0125mmol：0.25mol%）を加え、室温で10分攪拌した。次いで2M炭酸ナトリウム水溶液4.17mlを加え、緩やかに還流しながら二時間強く攪拌した。次いでトルエン4.17mlを加え、還流しながら更に15時間攪拌した。次いでトルエン5mlを加え還流しながら更に9時間攪拌した。次いで、末端処理剤として、2-フェニル-1,3,2-ジオキサボリナン0.1825g（1.125mmol）を加え15時間還流しながら攪拌し、次いでブロモベンゼン0.083g（0.53mmol）を加え5時間還流しながら攪拌した。反応終了後、トルエン20mlを加え希釈した後、反応混合物を室温まで冷却し、メタノール：水=10：1（容積比）の溶液の中に攪拌しながら滴下し、再沈殿精製した。得られたポリマーを濾過して集めた後、メタノール、水で数回洗浄した。次いで室温で真空乾燥して、例示化合物1のポリマーを得た。重量平均分子量

（Mw）8000（ポリスチレン換算）、数平均分子量（Mn）5000（ポリスチレン換算）、イオン化ポテンシャル（IP）5.85eV、電子親和力2.81eV、エネルギーギャップ3.04eV、溶液の発光極大波長414nm、吸収極大波長358nm（クロロホルム中、 $1 \times 10^{-7} \text{mol/l}$ ）、膜の発光極大波長420nm、膜の吸収極大波長365nm、ガラス転位温度172℃。

【0065】実施例2（例示化合物2の合成）

10 実施例1の1,4-ジブプロモ-2,5-ジメトキシベンゼンを2,6-ジブプロモピリジンに代えた以外は実施例1と同様にして重合、精製を行い、例示化合物2の重合体を得た。重量平均分子量（Mw）34000、数平均分子量（Mn）14000、イオン化ポテンシャル（IP）5.90eV、電子親和力2.70eV、エネルギーギャップ3.20eV、溶液の発光極大波長383nm、吸収極大波長368nm、半値幅32nm（クロロホルム中、 $1 \times 10^{-7} \text{mol/l}$ ）、膜の発光極大波長408nm、吸収極大波長370nm、ガラス転位温度112℃。

【0066】実施例3（例示化合物3の合成）

30 実施例1の1,4-ジブプロモ-2,5-ジメトキシベンゼンを2,5-ジブプロモピリジンに代えた以外は実施例1と同様にして重合、精製を行い、例示化合物3の重合体を得た。重量平均分子量（Mw）100000、数平均分子量（Mn）35000、イオン化ポテンシャル（IP）5.87eV、電子親和力2.99eV、エネルギーギャップ2.88eV、溶液の発光極大波長418nm、吸収極大波長386nm、半値幅40nm（クロロホルム中、 $1 \times 10^{-7} \text{mol/l}$ ）、膜の発光極大波長429nm、吸収極大波長388nm。

【0067】実施例4（例示化合物4の合成）

40 実施例1の1,4-ジブプロモ-2,5-ジメトキシベンゼンを1,4-ジブプロモテトラフルオロベンゼンに代えた以外は実施例1と同様にして重合、精製を行い、例示化合物4の重合体を得た。重量平均分子量（Mw）24000、数平均分子量（Mn）10000、イオン化ポテンシャル（IP）5.62eV、電子親和力2.40eV、エネルギーギャップ3.22eV、溶液の発光極大波長400nm、吸収極大波長341nm、半値幅63nm（クロロホルム中、 $1 \times 10^{-7} \text{mol/l}$ ）、膜の発光極大波長408nm、吸収極大波長347nm、ガラス転位温度58℃。

【0068】実施例5（例示化合物5の合成）

50 実施例1の1,4-ジブプロモ-2,5-ジメトキシベンゼンを2,5-ビス（4-ブプロモフェニル）-1,3,4-オキサジアゾールに代えた以外は実施例1と同様にして重合、精製を行い、例示化合物5の重合体を得た。重量平均分子量（Mw）153000、数平均分子量（Mn）47000、イオン化ポテンシャル（IP）5.

86 eV、電子親和力2.86 eV、エネルギーギャップ3.00 eV、溶液の発光極大波長410 nm、吸収極大波長376 nm、(クロロホルム中、 1×10^{-7} mol/l)、膜の発光極大波長446 nm、吸収極大波長369 nm、ガラス転位温度51℃。

【0069】実施例6 (例示化合物7の合成)

実施例1の1,4-ジブロモ-2,5-ジメトキシベンゼンを2,5-ジブロモピラジンに代えた以外は実施例1と同様にして重合、精製を行い、例示化合物7の重合体を得た。重量平均分子量(Mw)25000、数平均分子量(Mn)12000、イオン化ポテンシャル(IP)5.92 eV、電子親和力3.19 eV、エネルギーギャップ2.73 eV、溶液の発光極大波長443 nm、吸収極大波長420 nm、(クロロホルム中、 1×10^{-7} mol/l)、膜の発光極大波長450 nm、吸収極大波長428 nm、ガラス転位温度75℃。

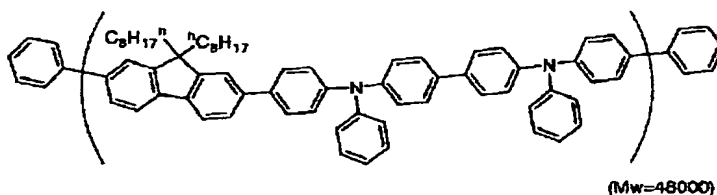
【0070】実施例7 (例示化合物8の合成)

実施例1の1,4-ジブロモ-2,5-ジメトキシベンゼンを1,3-ジブロモベンゼンに代えた以外は実施例1と同様にして重合、精製を行い、例示化合物8の重合体を得た。重量平均分子量(Mw)15000、数平均分子量(Mn)8000、イオン化ポテンシャル(IP)5.62 eV、電子親和力2.26 eV、エネルギーギャップ3.36 eV、溶液の発光極大波長367 nm、吸収極大波長343 nm、(クロロホルム中、 1×10^{-7} mol/l)、膜の発光極大波長418 nm、吸収極大波長344 nm、ガラス転位温度70℃。

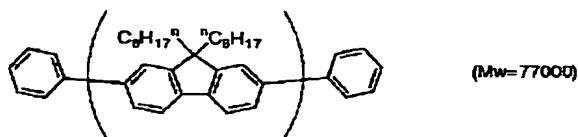
【0071】実施例8

洗浄したITO基板上に、Baytron P (PEDOT/PSS溶液(ポリ(3,4)エチレンジオキシチオフェン-ポリスチレンスルホン酸ドーパ体)/バイエル社製)を1000 rpm、30秒でスピンコートした*

試験化合物1.



試験化合物2.



【0074】実施例9

実施例8の例示化合物5を例示化合物4に代えた以外は実施例8と同様にして素子を作成した。発光特性は実施例8と同様に測定した。測定結果は以下のとおりであ

*後、150℃で1.5時間真空乾燥し、ホール注入/輸送性膜を作成した(膜厚約100 nm)。この上に試験用化合物1:試験用化合物2:例示化合物5=8 mg:30.4 mg:1.6 mgの混合物をキシレン4 mlに溶かした溶液をスピンコート(1000 rpm、20秒)した(膜厚約50 nm)。次いでこの有機薄膜上にパターンニングしたマスク(発光面積が5 mm×5 mmとなるマスク)を設置し、蒸着装置内でカルシウムを膜厚250 nmで蒸着した後、アルミニウムを膜厚300 nmで蒸着し(1.0×10^{-3} Pa~ 1.3×10^{-3} Pa)、発光素子を作成した。

【0072】発光特性は以下のように測定した。東陽テクニカ製ソースメジャーユニット2400型を用いて、ITOを陽極、カルシウム:アルミニウムを陰極として直流定電圧を発光素子に印加し発光させ、輝度をトプコン社の輝度計BM-8、発光波長を浜松フォトニクス社製スペクトルアナライザーPMA-11を用いて測定した。また、高温保存時の耐久性を評価するために、作製した素子を60℃、20%相対湿度の条件下で3時間放置後に発光させて相対輝度(駆動電圧10 Vで、素子作製直後の輝度を100とし、経時後輝度を相対値として表示)を測定した。測定結果は以下のとおりである。最低駆動電圧(発光が観測される最低の電圧)は3 Vで、10 Vにおいて1145 mA/cm²の電流密度を示し、2290 cd/m²の輝度で非常に色純度の良い濃青色発光を示した。最大発光波長λ_{max}は435 nm、半値幅42 nm、色度座標(0.159, 0.104)、外部量子効率0.21%であった。経時後の相対輝度は85であった。

【0073】

【化11】

る。最低駆動電圧(発光が観測される最低の電圧)は3 Vで、13 Vにおいて1605 mA/cm²の電流密度を示し、1762 cd/m²の輝度で非常に色純度の良い濃青色発光を示した。最大発光波長λ_{max}は434

nm、半値幅49nm、色度座標(0.154, 0.069)、外部量子効率0.19%であった。経時後の相対輝度は87であった。

【0075】実施例10

実施例8の例示化合物5を例示化合物1に代えた以外は実施例8と同様にして素子を作成した。発光特性は実施例8と同様に測定した。測定結果は以下のとおりである。最低駆動電圧(発光が観測される最低の電圧)は3Vで、11Vにおいて2085mA/cm²の電流密度を示し、2560cd/m²の輝度で非常に色純度の良い濃青色発光を示した。最大発光波長λ_{max}は434nm、半値幅43nm、色度座標(0.155, 0.062)、外部量子効率0.33%であった。経時後の相対輝度は89であった。

【0076】比較例1

実施例8の例示化合物5を公知化合物の試験化合物2に代えた以外は実施例8と同様にして素子を作成した。発光特性は実施例8と同様に測定した。測定結果は以下のとおりである。最低駆動電圧(発光が観測される最低の

電圧)は5Vで、10Vにおいて65mA/cm²の電流密度を示したに過ぎず、97cd/m²の輝度を示したに過ぎなかった。また発光色は淡青～青緑色であった。極大発光波長λ_{max}は422nmと483nm、半値幅125nmの発光を示し、溶液での発光特性から大きく変化してしまった(溶液での発光極大波長は約416nm、半値幅は約40nmであり)。色度座標は非常に色純度の低下した(0.178, 0.264)を示した。外部量子効率は0.01%に過ぎなかった(10V、97cd/m²で測定)。経時後の相対輝度は65であった。

【0077】

【発明の効果】上記の結果より、本発明の化合物を使用する事で、高輝度を示し、ポリマー主鎖間の相互作用によるエキサイマー形成を阻害して良好な色純度の素子を作成できることが明らかになった。更に高温保管後の輝度低下が小さく耐久性に優れた素子を提供できる。また塗布プロセスによる積層型素子の作成が実現でき、実用上有用である。

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☒ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.